

Al-Mg 合金板の降伏応力異方性に及ぼすミクロ組織と 転位セル壁配列の影響

Effects of Microstructure and Arrangement of Dislocation Cell Walls on the Yield Stress Anisotropy
in Al-Mg Alloy Sheets

佐久間 尚幸
Takayuki Sakuma

小松原 俊雄
Toshio Komatsubara

例えば、アルミニウム圧延材の強度や成形性は、圧延方向に対して平行、直角、45°の方向で特性が異なる。このような現象は異方性と呼ばれている。一般に、異方性には集合組織(結晶方位の集積度合)が大きな影響を及ぼすと理解されている。しかし、著者らは転位組織もまた未再結晶材の降伏応力の異方性を引き起こすことを報告した。

本研究では、缶蓋材などに多用されている Al-Mg 合金板の降伏応力の異方性をミクロ組織と転位セル壁の配列の観点から検討した。その結果、焼きなましに伴う異方性変化の挙動は冷間圧延によって導入された初期の転位セル配列のタイプに強い影響を受けることが明らかになった。したがって、降伏応力の異方性を制御するには、加工熱処理でミクロ組織と転位セル配列を最適化することが最も重要である。

Strength and formability, for example, of rolled aluminum sheets show different values in accordance with the relative angle between the tensile and rolling directions, i.e. parallel, perpendicular or 45° to the rolling direction. This phenomenon is called anisotropy, and it is generally understood that crystallographic texture has a significant influence on the anisotropy. However, we previously reported that dislocation structure also caused yield stress anisotropy in non-recrystallized sheets. In this work, the yield stress anisotropy in Al-Mg alloy sheets popularly used for can end stock and the like was studied by microstructural observations including arrangement of dislocation cell walls. As a result, it was found that the change in anisotropy by annealing was strongly affected by the type of initial dislocation cell arrangement introduced by cold rolling. Therefore, in order to control the yield stress anisotropy, optimization of the microstructure and the dislocation cell arrangement with appropriate thermomechanical treatment is the most important issue.

1. はじめに

金属材料には特定方向に対して結晶粒の方位が配向する、いわゆる集合組織が存在し、様々な材料特性の異方性に影響を及ぼす¹⁾。しかし、実際には集合組織だけでは説明し難い種々の異方性も存在すると思われる。にもかかわらず、一般的には、材料特性の異方性は集合組織の影響だけが考慮されることが多い。例えば、引張変形時の結晶格子回転だけを考慮して、冷間圧延した1050合金板の流動応力の異方性を検討した報告²⁾がある。しかし、高密度な転位セル壁はすべり変形への抵抗が大きく、その配列の異方性が降伏応力の異方性に影響を及ぼす可能性も考えられている³⁾。

このような背景から、著者らは以前、Al-Mg合金の冷延板とそれをサブグレイン組織にまで回復させた板の降伏応力異方性を集合組織と転位セルの配列異方性の観点から検討し、主な要因は集合組織よりも転位セルの配列異方性の影響が大きいことを報告した^{4), 5)}。すなわち、

- ①せん断帯や Deformation Zone などの高密度な転位セル領域では、セルの形状や配列が転位密度の低い領域と異なる。
- ②引張方向を変えた場合には、セルの形状や配列の違いによって、すべり変形に対する抵抗が異なる。したがって、高密度で異方性の高い転位セルが発達すると冷延板の降伏応力異方性が大きくなる。
- ③焼きなましで加工組織を十分に回復させると転位線

は消滅し、転位セルはサブグレインへと組織変化する。そのサブグレイン組織は元の転位セル組織の影響を受けるが、降伏応力の異方性は冷間圧延のままとは異なる。

以上のことは、様々な転位セル組織の状態以降伏応力異方性が大きく変わることを示唆している。したがって、転位セル組織の特徴と降伏応力異方性の関係を系統的に調べれば、用途に合せた異方性の制御が期待できる。そこで、高純度のAl-Mg, Al-Mg-Mn, Al-Mg-Fe合金を用いてマイクロ組織と転位セルの配列異方性の関係を整理し、高冷間圧延板と焼なまし板の降伏応力異方性を検討した⁵⁾。

本研究では先の報告内容⁵⁾に加え、冷間圧延後の焼なましによる転位セル組織の変化を透過電子顕微鏡(TEM)で観察して、加工組織と回復組織を含む圧延材での降伏応力異方性を更に検討した。

2. 実験方法

2.1 試料と加工熱処理

実用Al-Mg合金圧延板には、圧延方向に伸長した転位セル、せん断帯、粗大晶出物とその周りに発達するDeformation Zone、さらには析出物などが存在する。実用合金板への応用を検討するため、表1に示す3種類のAl-Mg合金を実験室のDC鋳造機で鋳造し、表2のプロセスで0.3 mm厚の冷間圧延板を作製した。

マイクロ組織の特徴を大きく変えるため、合金成分や熱間圧延前の均質化と加熱処理、さらには既報^{4), 5)}の場合と同じく中間焼なまし温度を試料ごとに変えた。熱間圧延前の熱処理で析出物の分布を制御し、中間焼なましでは再結晶粒サイズを制御した。以後、これらの試料を

表1 試料の化学成分

Table 1 Chemical composition of specimens. (mass%)

Alloy designation	Mg	Fe	Mn	Si	Al
4.5Mg-(F,C)	4.51	0.06	—	0.03	bal.
4.5Mg+0.5Fe	4.51	0.53	—	0.04	bal.
4.5Mg+1.0Mn	4.51	0.07	0.98	0.03	bal.

4.5Mg-F, 4.5Mg-C, 4.5Mg+0.5Fe, 4.5Mg+1.0Mnと略称し、表3にマイクロ組織の特徴を4種類の項目に分類し要約した。

4.5Mg-(F,C)は晶出物と析出物が少なく、中間焼なましでは再結晶粒サイズを変え、冷間圧延後のせん断帯の量を変えた。ここで、F,Cはそれぞれ再結晶粒サイズが小さい場合と大きい場合を表す。測定手法^{6), 7)}やSi含有量⁸⁾などによってアルミニウム中への固溶Fe量は異なるが、Al-Fe2元合金ではFeの固溶限が狭く平衡状態では最大約0.05 mass%までしか固溶できない。4.5Mg+0.5Feの場合には、この固溶限を大きく超えてFeを添加し、凝固時にAl-Fe-(Si)系の晶出物を多く晶出させた。4.5Mg+1.0MnはMnが500℃近傍の温度で最大の析出を示す⁹⁾ことを利用し、Al₆Mnもしくは不純物Fe, Siを含む α -Al(Fe, Mn)Siを熱間圧延前の熱処理で析出させた。

2.2 加熱処理後の光学顕微鏡組織と固溶Fe, Mn量の測定

鋳塊の板厚1/4の場所から試料を切り出して、加熱処理後の晶出物と析出物の分布を光学顕微鏡(OM)で観察した。20℃×1 minのバーカー処理後に、50℃の10% H₃PO₄浴中に3 min試料を浸漬してエッチングを行った。また、鋳塊と加熱処理後の固溶Fe, Mn量はOM観察用試料とほぼ同じ場所から試料を切り出し、熱フェ

表2 試料の加工熱処理

Table 2 Thermomechanical treatments of specimens.

State	4.5Mg		4.5Mg+	4.5Mg+
	F	C	0.5Fe	1.0Mn
Homogenization (°C-5 h)	500		450	500
Pre-heating (°C-2 h)	530		450	500
Hot rolling	70 → 4 (mm)			
Cold rolling	4 → 2 (mm)			
Intermediate annealing (°C-1 min)	400	550	550	550
Cold rolling	2 → 0.3 (mm) <85%CR>			
Final annealing (°C-1 h)	120, 160, 200, 240			

表3 試料のマイクロ組織的特徴

Table 3 Microstructural characteristics of specimens.

State	Before cold rolling	85% cold rolled state		
	Grain size	Shear band	Coarse particle (Deformation zone)	Fine precipitate
4.5Mg-F	fine	few	few	few
4.5Mg-C	coarse	many	few	few
4.5Mg+0.5Fe	fine	few	many	medium
4.5Mg+1.0Mn	fine	few	medium	many

ノール溶解ろ液分析法¹⁰⁾で測定した。

2.3 85%冷延板のせん断帯、晶出物の分布観察

せん断帯は120℃の大気炉中で7 d熱処理して、 β' 相などのAl-Mg系析出相をせん断帯上に優先析出^{11), 12)}させてOMで観察した。25℃の10% H_3PO_4 浴中に30 min試料を浸漬してエッチングした。晶出物の分布は走査電子顕微鏡(SEM)で観察した。これらはすべて圧延方向断面で観察した。

2.4 TEM観察

表3に示したマイクロ組織の特徴を考慮し、85%冷延板と焼なまし板の転位セル組織とサブグレイン組織をTEMで観察した。本論文で示す4.5Mg + 1.0Mnは圧延方向に伸長した転位セルと焼なましで等軸状に変化したサブグレインを、4.5Mg + 0.5Feは晶出物周りの組織変化を中心に観察した。

2.5 引張試験

85%冷延板と最終焼なまし板から、圧延方向に対して0, 45, 90°方向に試料を切り出し、JIS5号試験片を作製して、ひずみ速度 $6.7 \times 10^{-3}/s$ で引張試験を行った。圧延後の長時間室温放置によるせん断帯内部の加工組織の回復や β' 相などの析出による経時変化^{13), 14)}の影響を極力避けるため、圧延後2, 3 d以内には引張試験を完了した。

3. 実験結果と考察

3.1 各試料のOM, SEM組織と固溶Fe, Mn量

図1に加熱処理を施した鋳塊の晶出物と析出物の分布を示すOM写真を、表4に熱フェノールろ液法で測定し

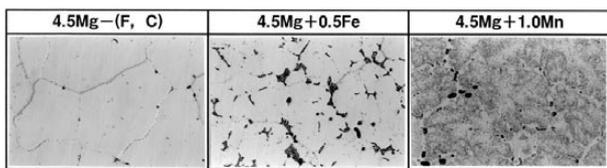


図1 加熱処理後の鋳塊の晶出物と析出物の分布
Fig.1 Optical micrographs showing distribution of coarse particles and fine precipitates after pre-heating.

表4 熱フェノール溶解ろ液分析法で測定した鋳塊と加熱処理後の固溶Fe, Mn量

Table 4 Solute Fe and Mn concentration of as DC cast and after pre-heating in specimens measured by phenol extraction method.

State	As DC cast		After pre-heating	
	Mn (mass%)	Fe (ppm)	Mn (mass%)	Fe (ppm)
4.5Mg - F	—	54	—	45
4.5Mg - C	—	212	—	15
4.5Mg + 0.5Fe	0.687	53	0.236	1

た鋳塊と加熱処理後の固溶Fe, Mn量を示す。

4.5Mg-(F, C)は不純物Fe, Siの影響で、粒界上にはAl-Fe-(Si)や Mg_2Si と考えられる晶出物が、粒内にはそれら析出物のエッチピットがわずかに認められる。4.5Mg+0.5Feは固溶Fe量の分析値から明らかなように、添加したFeの90%が凝固時に晶出した。多くはAl-Fe-(Si)の晶出物と考えられる。

4.5Mg+1.0Mnの鋳塊の固溶Mn量は0.687 mass%であった。したがって、約0.3 mass%のマンガンが凝固時に晶出したことになる。更に、加熱処理後の固溶Mn量は0.236 mass%まで低下した。熱間圧延前の加熱処理で0.45 mass%近くのマンガンが析出したと考えられる。このため、粒内には数多くの Al_6Mn もしくは α -Al(Fe, Mn)Siの析出物が認められる。

図2に85%冷延板のせん断帯と晶出物の分布を示す。また、下欄に最大径1 μm 以上の晶出物の面積率も記載した。4.5Mg - Cは中間焼なましで平均粒径約85 μm の比較的粗大な再結晶粒に成長させた。そのため、85%冷延では旧粒界を貫通するマクロなせん断帯が多数発達した¹⁵⁾。他の試料では、中間焼なまし後の平均粒径を10~20 μm と比較的小さくなるよう制御し、4.5Mg - Fは20 μm 、4.5Mg + 0.5Feは19 μm 、4.5Mg + 1.0Mnは12 μm の平均粒径になった。そのため、旧粒界を貫通するマクロなせん断帯は、4.5Mg - Cのように発達しなかった⁵⁾。

晶出物は4.5Mg + 0.5Feで最も多く認められ、4.5Mg + 1.0Mn, 4.5Mg - (F, C)の順に少なくなった。何れの試料でも写真上で白く見えるAl-Fe系またはAl-Mn系の晶出物¹⁶⁾が大部分を占めており、黒く見える Mg_2Si の晶出物¹⁶⁾は比較的少なかった。

3.2 焼なましによる降伏応力と異方性の変化

図3に圧延方向に対して引張方向を0, 45, 90°方向に変えた場合の焼なましによる降伏応力(YS)の変化を示

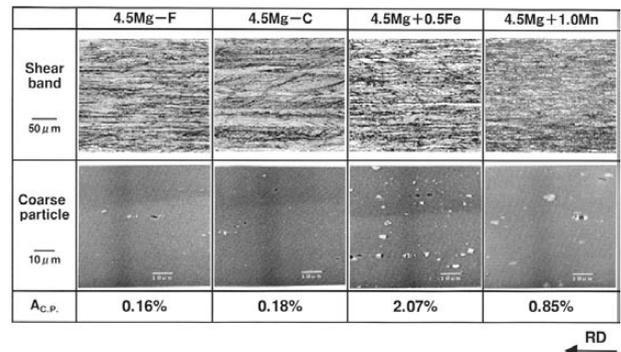


図2 85%冷延板のせん断帯と晶出物の分布
Fig.2 Optical and SEM micrographs showing distribution of shear bands and coarse particles in 85% cold rolled specimens. Area fraction of coarse particles ($A_{c.p.}$) larger than 1 μm is also shown in the column under the micrographs.

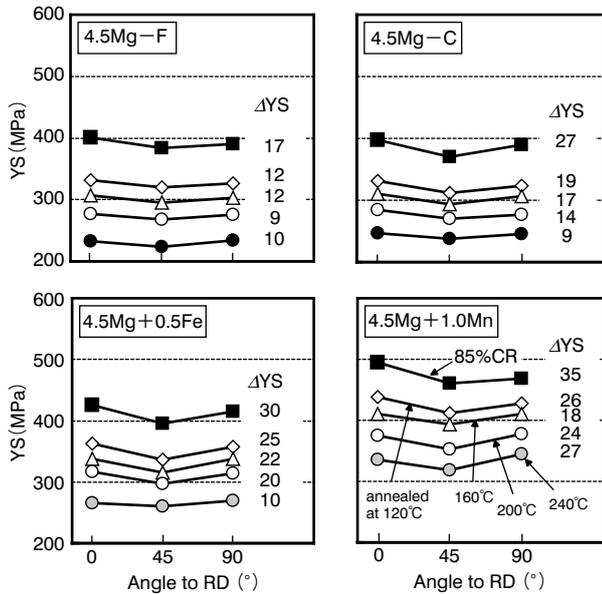


図3 85%冷延板と回復焼なまし板の各引張方向の降伏応力
 Fig.3 Yield stress of 85% cold rolled and recovery annealed sheets with different tensile direction. Yield stress anisotropy, ΔYS , was estimated by subtracting minimum yield stress from maximum yield stress.

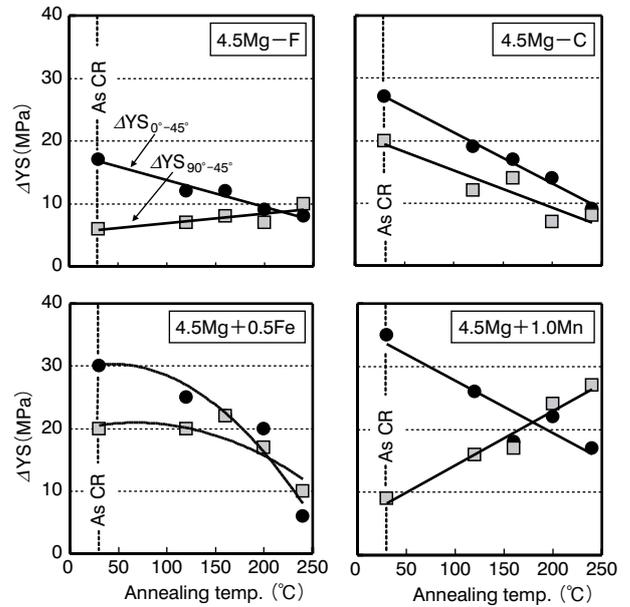


図4 85%冷延板の焼なましによる $\Delta YS_{0^\circ-45^\circ}$, $\Delta YS_{90^\circ-45^\circ}$ の変化
 Fig.4 Variation in $\Delta YS_{0^\circ-45^\circ}$ and $\Delta YS_{90^\circ-45^\circ}$ with temperature of recovery annealing for 1h starting from 85% cold rolled states.

す。また、各方向での最大降伏応力と最小降伏応力の差 (ΔYS)を図中に記載した。

試料によってマイクロ組織の特徴は大きく異なるが、冷間圧延板の降伏応力は何れの試料でも0, 90°方向に比べて45°方向が低い。また、冷延板の ΔYS は旧粒界を貫通するマクロなせん断帯、晶出物さらには析出物が少ない4.5Mg-Fが最も小さい。

焼なましを施すと降伏応力は低下するが、軟化の挙動が各方向で異なり、その結果、焼なまし温度によって ΔYS は変化した。また、 ΔYS の変化は大きく2つのグループに分かれた。4.5Mg-Fと4.5Mg+1.0Mnは、ある焼なまし温度までは降伏応力の異方性は小さくなるが、更に焼なまし温度を上げると、逆に異方性は大きくなった。一方、4.5Mg-Cと4.5Mg+0.5Feは焼なまし温度が高くなるにつれ ΔYS は小さくなった。

図4に85%冷延板の焼なましによる ΔYS の変化を0°と45°方向, 90°と45°方向の差 ($\Delta YS_{0^\circ-45^\circ}$, $\Delta YS_{90^\circ-45^\circ}$)で整理した。焼なまし温度が高くなると $\Delta YS_{0^\circ-45^\circ}$ は小さくなるが、逆に $\Delta YS_{90^\circ-45^\circ}$ は大きくなった。その結果、図3で示したように、ある焼なまし温度で ΔYS が最小になった。これは、4.5Mg-F, 4.5Mg+1.0Mnは3方向の中で0°方向の軟化が速く、次いで45°方向で、90°方向が最も遅いことによる。一方、4.5Mg-C, 4.5Mg+0.5Feは、他の方向に比べて45°方向の軟化が最も遅い。そのため、焼なまし温度が高くなるにつれ $\Delta YS_{0^\circ-45^\circ}$ と $\Delta YS_{90^\circ-45^\circ}$ は小さくなった。

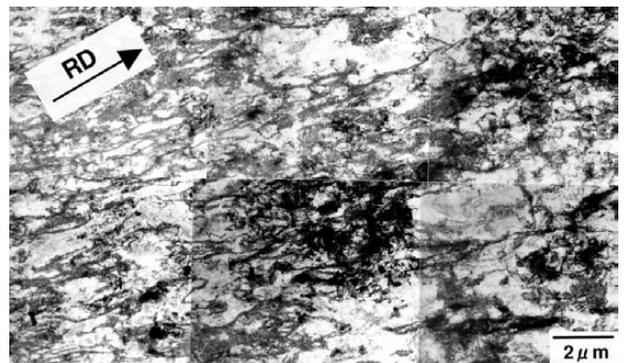


図5 85%冷間圧延した試料4.5Mg+1.0Mnの圧延方向に伸張した転位セル
 Fig.5 TEM micrograph showing dislocation cells elongated to the rolling direction of 85% cold rolled 4.5Mg+1.0Mn specimen.

3.3 85%冷延板と焼なまし板のTEM組織

焼なましで ΔYS の挙動に大きな差が現れた各グループの転位セル組織の特徴を検討した。伊藤ら¹⁷⁾は、板面法線方向と断面方向からのTEM観察では、転位セル形状が異なると報告している。本論文でのTEM組織は板面法線方向から観察したものである。

図5には焼なましすると ΔYS が極小となる4.5Mg+1.0Mnの85%冷延板のTEM組織を示す。圧延方向に伸張した転位セルが特徴的である。また、これは4.5Mg-Fでも同様であった。

図6に240℃で焼なましした4.5Mg+1.0MnのTEM組織を示す。図5で示した圧延方向に伸張した転位セルはほとんど残留しておらず、全体的に等軸なサブグレインへと組織変化している。図中の矢印で示したサブグレイン内には、熱間圧延前の熱処理で析出したと考えられる板

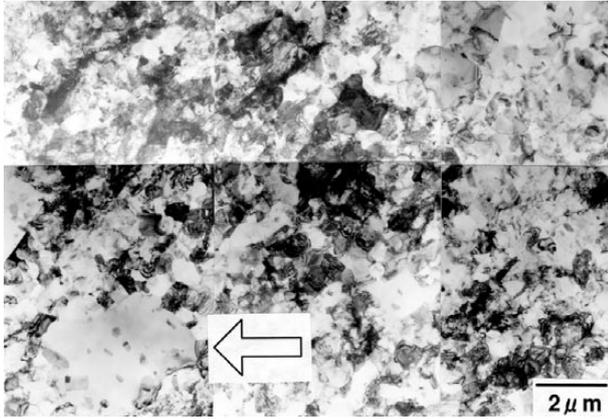


図6 240°Cで1 hの焼なまし処理を施した試料4.5Mg + 1.0Mnの亜結晶粒組織
Fig.6 TEM micrograph showing subgrain structures of 4.5Mg + 1.0Mn specimen annealed at 240°C for 1h.

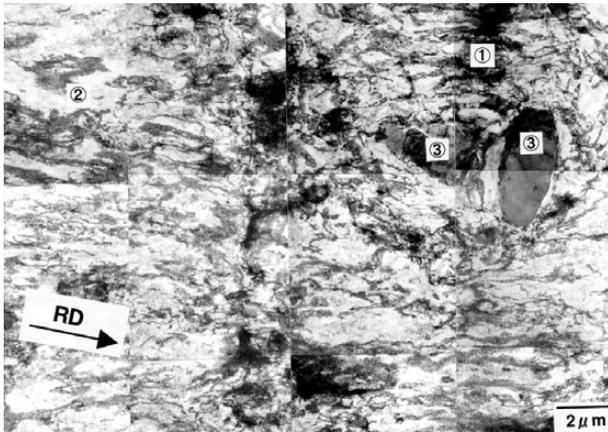


図7 85%冷間圧延した試料4.5Mg + 0.5FeのAl-Fe粗大粒子周りに発達した転位セル
Fig.7 TEM micrograph showing dislocation cells developed around Al-Fe coarse particles in 85% cold rolled 4.5Mg+0.5Fe specimen.
① Deformation zone ② Dislocation cells elongated to the rolling direction ③ Al-Fe coarse particle

状や棒状の Al_6Mn または $\alpha-Al(Fe, Mn)Si$ が認められる。これら微細な析出物は、サブバウンダリーの移動を抑制する効果があり¹⁸⁾、軟化挙動に大きく影響する。このため、焼なましによる ΔYS の変化は4.5Mg-Fよりも大きく現れたと推測される。

図7には焼なまし温度が高くなるにつれ ΔYS が小さくなる4.5Mg + 0.5Feの85%冷延板のTEM組織を示す。Deformation Zoneを形成する粒子サイズは一般的に1 μm 程度以上であると報告されている^{19), 20)}。図7で③と記した2つのAl-Fe晶出物は約3 μm であり、その周囲にはDeformation Zone (①)が形成されている。Deformation Zone内の転位セルサイズは、②の領域内の転位セルサイズよりも小さい。したがって、Deformation Zone内の方が②の領域内よりも転位線が密集しており、転位密度が高いことを示唆している。

図8には240°Cで焼なましした4.5Mg + 0.5FeのTEM組織を示す。②の領域では冷間圧延で形成された転位セ

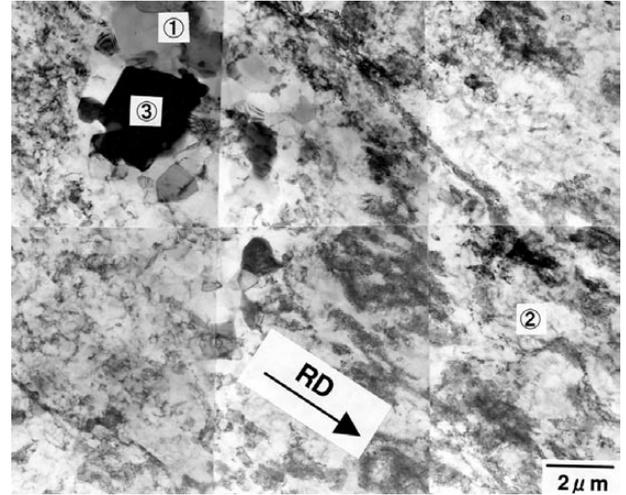


図8 240°Cで1 hの焼なまし処理を施した試料4.5Mg + 0.5FeのTEM組織
Fig.8 TEM micrograph showing 4.5Mg + 0.5Fe specimen annealed at 240°C for 1h.
① Deformation zone before annealing ② Dislocation cells elongated to the rolling direction ③ Al-Fe coarse particle

ルが未だに残存しており、セル壁は厚いままである。一方、冷間圧延したままの状態ではDeformation Zoneであった可能性が高いAl-Fe系粗大晶出物の周辺領域(①)では、サブグレイン化が進行しており転位密度は大きく低下していた。すなわち、②の領域内ではDeformation Zone内よりもサブグレイン化が遅れている。このため、冷間圧延で発達したDeformation Zoneは、焼なましによって徐々にすべり変形に対する障害物としての役割を果たせなくなると考えられる。

4. おわりに

高純度のAl-Mg, Al-Mg-Mn, Al-Mg-Fe合金を用いてマイクロ組織と転位セルの配列異方性の関係を整理し、加工組織と回復組織を含む圧延材での降伏応力異方性を検討した。結果は以下の通りである。

- (1) ミクロ組織が主に微細粒、もしくは微細粒+析出物から成る4.5Mg-F, 4.5Mg + 1.0Mnは冷延板の転位セル形状が規則的で、多くは圧延方向に伸長していた。一方、粗大粒+せん断帯、もしくは微細粒+粗大晶出物から成る4.5Mg-C, 4.5Mg + 0.5Feはせん断帯やDeformation Zoneによって冷延板の転位セル形状が不規則になっていた。
- (2) 冷延板を焼なますと、4.5Mg-Fと4.5Mg + 1.0Mnは圧延方向に伸長した転位セルから等軸なサブグレインへと変化した。一方、転位セル形状の不規則性が大きい4.5Mg-Cと4.5Mg + 0.5Feはせん断帯やDeformation Zoneなどから優先的にサブグレイン化が始まり、焼なまし前に圧延方

向に伸長していた転位セルはサブグレイン化が遅れていた。

- (3) 冷延板を焼なまししたときには上記の組織変化が生じたことで、各方向で軟化挙動が異なり、降伏応力の異方性は変化した。更に、その異方性の挙動は大きく2つのグループに分かれた。すなわち、4.5Mg - F, 4.5Mg + 1.0Mnの場合、ある焼なまし温度までは降伏応力の異方性は小さくなるが、更に焼なまし温度を上げると、逆に異方性は大きくなった。一方、4.5Mg - C, 4.5Mg + 0.5Feは焼なまし温度が高くなるにつれ、降伏応力の異方性は小さくなった。

以上の結果から、転位セルの配列異方性は結晶粒径や晶出物、析出物等と密接に関係しており、これらの組織要因は降伏応力異方性に大きな影響を及ぼす。したがって、降伏応力の異方性制御には、マイクロ組織と転位セルの配列異方性の関係を考慮した材料設計が必要と思われる。

なお、この論文は、軽金属, **53** (2003), 61-66.を転載したものである。

参考文献

- 1) 井上博史: 軽金属, **42** (1992), 358.
- 2) 高橋寛: シンポジウム予稿集「材料集合組織とその工学的応用に関する技術の現状と将来展望」, (1996), 5.
- 3) N. Hansen and D. Juul Jensen : Acta Metall. Mater., **40** (1992), 3265.
- 4) 佐久間尚幸, 小松原俊雄, 小松伸也: 軽金属, **52** (2002), 53.
- 5) T. Sakuma, T. Komatsubara, and S. Komatsu : Mater. Sci. Forum, 396-402, no.2, (2002), 1055.
- 6) J. K. Edgar : Trans. AIME., **180** (1948), 225.
- 7) 西尾通卓, 那須三郎, 村上陽太郎: 日本金属学会誌, **34** (1970), 1173.

- 8) V. G. Rivlin and G. V. Raynor : International Metals Reviews, no. 3, (1981), 133.
- 9) 馬場義雄, 木村紘, 齊藤莞爾, 河合三弘: 住友軽金属技報, July, (1975), 124.
- 10) 小松伸也, 村松俊樹: 軽金属, **50** (2000), 518.
- 11) David J. Lloyd, Ed. F. Butryn, and Moy Ryvola : Microstruct. Sci., **10** (1982), 373.
- 12) E. Koken and J. D. Embury : Scripta Met., **22** (1988), 99.
- 13) 村上雄, 山本美樹夫, 神尾彰彦, 高橋恒夫: 軽金属, **40** (1990), 538.
- 14) 小松伸也, 池田勝彦, 河本知広, 田畑義昭, 谷本孝弘: 軽金属, **48** (1998), 335.
- 15) H. Inagaki and Kohara : Z. Metallkde, **88** (1997), 570.
- 16) 長谷川浩平, 土田裕, 久津見啓之, 三田尾真司, 藤田毅, 荒木健治, 大沢紘一, 新倉正和: 軽金属, **49** (1999), 107.
- 17) 伊藤良規, 辻伸泰, 斎藤好弘, 宇都宮裕, 左海哲夫: 日本金属学会誌, **64** (2000), 429.
- 18) F. Humphreys and M. Hartherly : Recrystallization and Related Annealing Phenomena (1996), 164.
- 19) F. J. Humphreys : Acta Met., **25** (1977), 1323.
- 20) R. Sandstrom : Z. Metallkde, **71** (1980), 681.



佐久間 尚幸 (Takayuki Sakuma)
深谷工場製造部



小松原 俊雄 (Toshio Komatsubara)
技術研究所 室長